

放射性 Cs 含有微粒子から推測される福島原発事故発生時の 2 号機の炉内環境

Environment inside Unit 2 at the time of the Fukushima nuclear accident

inferred from radiocesium-bearing microparticles

*奥村 大河¹, 山口 紀子², 菅 大暉¹, 高橋 嘉夫¹, 小暮 敏博¹

¹東京大学, ²農研機構

福島原発事故発生時に 2 号機内部で生成され放出された放射性 Cs 含有微粒子を TEM/STEM や STXM で調べた結果、微粒子中に固溶している Fe は 2 価が主であること、Na が数パーセント含まれること、B はほとんど含まれないことがわかった。これらの知見は事故時の炉内環境推定に一定の制約を与えうると考えられる。

キーワード: 放射性 Cs 含有微粒子, CsMP, 珪酸塩ガラス, 福島原発事故, TEM, STEM, EDS, EELS, STXM

1. 緒言

福島原発事故により放出された放射性 Cs の一部は、珪酸塩ガラスを主成分とする微粒子 (CsMP) に含まれて飛散した。CsMP は事故時に 2 号機内部で生成されたと考えられており、Cl, K, Fe, Mn, Zn, Rb, Sn, Cs 等の元素が珪酸塩ガラスに含まれている。その内部構造には当時の炉内環境が反映されているが、放射光 X 線を用いた分析では Fe 等の元素が高酸化状態であるのに対し¹、TEM で同定された CsMP 包含物には 2 価の Fe が含まれており²、CsMP 形成時の雰囲気については結論が得られていない。また Na や B といった軽元素は蛍光 X 線分析では測定することが難しく、微粒子中の有無も未解明である。これらの問題を明らかにするため、TEM/STEM や走査型透過 X 線顕微鏡 (STXM) を用いた分析を行った。

2. 結果と考察

2-1. Fe の価数 | STXM を用いて CsMP に含まれる Fe の L 吸収端の XAFS 測定を行った結果、Fe は 2 価が主であった。よって事故時の炉内雰囲気はある程度還元的であったと推測される。また同一箇所の測定を繰り返すと 3 価の割合が増えることから、X 線照射によりガラス中の Fe は容易に酸化されることがわかり、先行研究の放射光 X 線分析ではすでに酸化された状態を見ていたものと考えられた。

2-2. Na の有無 | STXM により Na の K 吸収端の XAFS 測定を行うと明確なエッジジャンプが見られ、CsMP には Na が含まれていることがわかった。またエネルギー分散型の X 線検出器 (EDS) では Na-K 線と Zn-L 線のピークが重複してしまうが、Na を含まない Zn 含有合成ガラスの Zn-L と Zn-K α の実測強度比と CsMP のそれとを比較すると、明らかに CsMP には Na が含まれていると判断された。STXM や EDS の結果から Na の定量を行うと、原子比で Na/Si = 0.15 程度であると推測された。また TEM による観察では NaCl が包含されている CsMP も見つかった。炉内での Na の起源を注入海水と仮定すると、CsMP 形成時には海水が炉内に到達していたことが示唆される。

2-3. B の有無 | 軽元素の検出感度が高い電子エネルギー損失分光 (EELS) により CsMP を分析すると、B のピークは検出されず、B はほとんど含まれていないと考えられた。よって、事故時には B₄C 制御棒はほとんどがステンレスと共晶を形成して熔融し、CsMP の形成場には存在しなかったと考えられる。

参考文献

[1] Abe et al., *Anal. Chem.* (2014) **86**, 8521–8525. [2] Okumura et al., *Microscopy* (2019) **68**, 234–242.

*Taiga Okumura¹, Noriko Yamaguchi², Hiroki Suga¹, Yoshio Takahashi¹ and Toshihiro Kogure¹

¹UTokyo, ²NARO